Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP04/019845

International filing date: 28 December 2004 (28.12.2004)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP

Number: 2004-019743

Filing date: 28 January 2004 (28.01.2004)

Date of receipt at the International Bureau: 17 February 2005 (17.02.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in

compliance with Rule 17.1(a) or (b)



日本国特許庁 JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 Date of Application:

2004年 1月28日

出 願 番 号 Application Number:

特願2004-019743

[ST. 10/C]:

[J P 2 0 0 4 - 0 1 9 7 4 3]

出 願 人
Applicant(s):

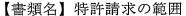
日産自動車株式会社

特許庁長官 Commissioner, Japan Patent Office 2005年 2月 4日

1) 1



【書類名】 【整理番号】 【提出日】	特許願 NM03-02153 平成16年 1月28日	
【あて先】 【国際特許分類】 【発明者】	特許庁長官殿 HO1M 8/24	
【先明石】 【住所又は居所】 【氏名】 【発明者】	神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地藤木 章	日産自動車株式会社内
【住所又は居所】 【氏名】	神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地平尾 隆行	日産自動車株式会社内
【発明者】 【住所又は居所】 【氏名】	神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 前川 幸広	日産自動車株式会社内
【発明者】 【住所又は居所】 【氏名】	神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 鈴木 晴彦	日産自動車株式会社内
【発明者】 【住所又は居所】 【氏名】	神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 岩本 雅則	日産自動車株式会社内
【発明者】 【住所又は居所】 【氏名】	神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 齊藤 寛	日産自動車株式会社内
【発明者】 【住所又は居所】 【氏名】	神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 清水 健	日産自動車株式会社内
【発明者】 【住所又は居所】 【氏名】	神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地 三木 貞雄	日産自動車株式会社内
【特許出願人】 【識別番号】 【氏名又は名称】	000003997 日産自動車株式会社	
【代理人】 【識別番号】 【弁理士】	100075513	
【氏名又は名称】 【選任した代理人】	後藤 政喜	
【識別番号】 【弁理士】	100084537	
【氏名又は名称】 【手数料の表示】	松田 嘉夫	
【予納台帳番号】 【納付金額】 【提出物件の目録】	019839 21,000円	
【物件名】 【物件名】 【物件名】	特許請求の範囲 1 明細書 1 図面 1	
【物件名】 【包括委任状番号】	要約書 1	



【請求項1】

固体高分子膜の両側に夫々拡散層を介在させてアノードガスを供給する流路を備えたアノード側セパレータとカソードガスを供給する流路を備えたカソード側セパレータとを接合して形成する固体高分子膜型燃料電池セルの製造方法であり、

前記アノード側セパレータおよびカソード側セパレータの流路部分の拡散層との接触表面に接着剤を塗布し、

一対の押え治具間に、前記アノード側セパレータ、拡散層、固体高分子膜、拡散層およびカソード側セパレータをこの順に配列し、

これら燃料電池セル構成部材を加熱手段により加熱しつつ押え治具により積層方向に圧縮し、

固体高分子膜とその両側の拡散層とを熱圧着させるとともに、各拡散層と隣接するセパレータの流路部分の前記接触表面とを熱接着させることを特徴とする固体高分子膜型燃料電池セルの製造方法。

【請求項2】

固体高分子膜の両側に夫々拡散層を介在させてアノードガスを供給する流路を備えたアノード側セパレータとカソードガスを供給する流路を備えたカソード側セパレータとを接合して形成する固体高分子膜型燃料電池セルの製造方法であり、

前記拡散層の固体高分子膜に対面する側に接着剤を塗布し、

前記アノード側セパレータおよびカソード側セパレータの流路部分の拡散層との接触表面に接着剤を塗布し、

一対の押え治具間に、前記アノード側セパレータ、拡散層、固体高分子膜、拡散層およびカソード側セパレータをこの順に配列し、

これら燃料電池セル構成部材を加熱手段により加熱しつつ押え治具により積層方向に圧縮し、

固体高分子膜とその両側の拡散層とを熱接着させるとともに、各拡散層と隣接するセパレータの流路部分の前記接触表面とを熱接着させることを特徴とする固体高分子膜型燃料電池セルの製造方法。

【請求項3】

前記接着剤は、熱硬化樹脂を主体とするものであることを特徴とする請求項1または請求項2に記載の固体高分子膜型燃料電池セルの製造方法。

【請求項4】

前記固体高分子膜は、その両面に触媒層を備える複合膜であることを特徴とする請求項 1から請求項3のいずれか一つに記載の固体高分子膜型燃料電池セルの製造方法。

【請求項5】

前記押え治具は、当接するセパレータ側形状の凹凸を補完する表面形状を備える部材を 介在させてセパレータを積層方向に押圧するものであることを特徴とする請求項1から請 求項4のいずれか一つに記載の固体高分子膜型燃料電池セルの製造方法。

【請求項6】

前記押え治具は、当接するセパレータ側形状の凹凸を補完する表面形状を備えるものであることを特徴とする請求項1から請求項4のいずれか一つに記載の固体高分子膜型燃料電池セルの製造方法。

【請求項7】

一対の押え治具間に、アノード側セパレータ、拡散層、固体高分子膜、拡散層およびカソード側セパレータをこの順に配列し、これら燃料電池セル構成部材を加熱手段により加熱しつつ押え治具により積層方向に圧縮して、固体高分子膜とその両側の拡散層とを熱圧着若しくは接着剤により接着するとともに、各拡散層と隣接するセパレータの流路部分の接触表面とを接着剤により接着したことを特徴とする固体高分子膜型燃料電池セル。

【書類名】明細書

【発明の名称】固体高分子膜型燃料電池セルおよびその製造方法

【技術分野】

[0001]

本発明は、固体高分子膜型燃料電池セルおよびその製造方法に関するものである。

【背景技術】

[0002]

従来から電解質接合体の両面に触媒層を形成し、その表面に拡散層およびセパレータを 積層して一体化させることで連続的に固体高分子膜型燃料電池セルを製造する製造方法が 提案されている(特許文献 1 参照)。

[0003]

これは、拡散層一体化工程において、塗布された電解質溶液を乾燥させた拡散層を、電解質膜上へ触媒層を形成してホットロールにより一体化させた触媒層・電解質接合体の両面に配置してホットロールにより拡散層を接合し、次に、単セル一体化工程において、セパレータ・セル枠接合体を、前記触媒層・電解質接合体および拡散層一体化物の両面に載置し、ホットロールによりセル枠部分で接着して一体化することにより、単セルを連続的に得るようにしている。

【特許文献1】特開2001-236971号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

[0004]

しかしながら、上記従来例では、拡散層一体化工程と単セル一体化工程との2工程により、拡散層およびセパレータを順次ホットロール若しくはホットプレスにより熱圧着および接着する、即ち、固体高分子膜および拡散層の圧着と固体高分子膜およびセパレータ・セル枠の接着とを別々に行っており、製造工程が長いという解決課題があった。

[0005]

そこで本発明は、上記問題点に鑑みてなされたもので、電解質膜への拡散層およびセパレータの接合を同時に可能とする固体高分子膜型燃料電池セルおよびその製造方法を提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

[0006]

本発明は、固体高分子膜の両側に夫々拡散層を介在させてアノードガスを供給する流路を備えたアノード側セパレータとカソードガスを供給する流路を備えたカソード側セパレータとを接合して形成する固体高分子膜型燃料電池セルの製造方法であり、前記アノード側セパレータおよびカソード側セパレータの流路部分の拡散層との接触表面に接着剤を塗布し、一対の押え治具間に、前記アノード側セパレータ、拡散層、固体高分子膜、拡散層およびカソード側セパレータをこの順に配列し、これら燃料電池セル構成部材を加熱手段により加熱しつつ押え治具により積層方向に圧縮し、固体高分子膜とその両側の拡散層とを熱圧着若しくは接着剤により接着させるとともに、各拡散層と隣接するセパレータの流路部分の前記接触表面とを熱接着させるようにした。

【発明の効果】

[0007]

したがって、本発明では、一対の押え治具間に、アノード側セパレータ、拡散層、固体高分子膜、拡散層およびカソード側セパレータをこの順に配列し、これら燃料電池セル構成部材を加熱手段により加熱しつつ押え治具により積層方向に圧縮し、固体高分子膜とその両側の拡散層とを熱圧着若しくは接着剤により接着させるとともに、各拡散層と隣接するセパレータの流路部分の前記接触表面とを接着剤により熱接着させるため、固体高分子膜と拡散層の圧着若しくは接着と拡散層とセパレータの間の接着とが同時に実施でき、燃料電池セルの各構成部材をホットプレスにより一度に一体化させることができる。また、拡散層はセパレータの流路部分の接触表面と隙間無く確実に接合させることができ、両者

の電気的接続も良好となる。

【発明を実施するための最良の形態】

[0008]

以下、本発明の固体高分子膜型燃料電池セルおよびその製造方法を一実施形態に基づいて説明する。図1および図2は、本発明を適用した固体高分子膜型燃料電池セルおよびその製造方法の第1実施形態を示し、図1は固体高分子膜型燃料電池セルの製造工程の概要を説明する工程図、図2はホットプレス工程の詳細図である。

[0009]

図1において、固体高分子膜型燃料電池セルの製造工程は、電解質膜製造工程1と、拡散層製造工程2と、セパレータ製造工程3と、これらの製造工程で製造された電解質膜5、拡散層6およびセパレータ7等の燃料電池構成部品を組合せて一体化するホットプレス工程4と、ホットプレス工程4へ各製造工程からの燃料電池構成部品を供給する搬送手段5A~7Aとを備える。

[0010]

前記電解質膜製造工程1は、パーフルオロエチレンスルホン酸樹脂膜5(以下、電解質膜という)の両面に予め所定のピッチで白金を主体とする触媒をコーティングして触媒層8としたMEA(Membrane Electrode Assembly)フィルム9(触媒層を含んだ複合膜)が用いられ、その両面を保護シートで覆った状態でリールにロール状に巻かれて投入される。そして、MEAフィルム9は、ロール状態から巻戻して巻端からMEAフィルム9を搬送手段5Aにより保護シートと共に送出し、図示しない途中部分において保護シートを剥離して、図2に示す状態で、ホットプレス工程4に投入される。

$[0\ 0\ 1\ 1]$

MEAフィルム9には、例えば、その両側に搬送穴を配列して、この搬送穴に搬送手段の搬送ローラ外周に設けた送り突起を順次係合させ、搬送ローラ同士を同期して回転させることで、MEAフィルム9の膜面をたるむことなく搬送するようにしてもよい。また、MEAフィルム9の少なくとも一方の縁には、所定のピッチ毎に位置決めマークを付けることが望ましい。この位置決めマークの所定のピッチは、燃料電池セルとして組立てられる際に、隣接する燃料電池セルと適切な間隔が保持できるスパーンに設定され、MEAフィルム9の両面に所定間隔でコーティングして形成した白金等の触媒層8の位置と対応させる。

$[0\ 0\ 1\ 2\]$

なお、供給される電解質膜 5 に触媒 8 がコーティングされていないMEAフィルム 9 の場合には、前記位置決めマークに対応して触媒を塗布等によりコーティングしてホットロールにより電解質膜 5 と触媒とを一体化させて電解質膜 5 上に触媒層 8 を形成してから搬送手段 5 Aによりホットプレス工程 4 へ搬送する。若しくは、ガス拡散層 6 の表面に触媒層を形成し、ガス拡散層 6 の電解質膜 5 への接合時に、前記位置決めマークに対応して触媒層を電解質膜 5 に接触させて接合するようにする。

[0013]

また、電解質膜5は、燃料電池セルとしてホットプレス工程4における組立完了時に分離される中央部分と搬送ローラに係合する搬送穴を備える縁部分とに分割して貼付けるようにしてもよい。このMEAフィルム9では、燃料電池セルとして組立完了時に分離される中央部分に貼付いた保護シートのみを剥がして回収し、搬送穴を備える縁部分に貼付いた保護シートは剥がすことなく、搬送手段5Aによりホットプレス工程4に供給する。このように、搬送穴を備える縁部分に貼付いた保護シートをMEAフィルム9上に残すことにより、搬送時にMEAフィルム9に加えられる負荷により搬送穴が破損するのを防止することができる。また、搬送されるMEAフィルム9の伸びを防止することができ、MEAフィルム9の位置決め精度を向上できる。

$[0\ 0\ 1\ 4]$

前記拡散層製造工程2は、セパレータ7より供給されるガスを透過・拡散させるGDL 出証特2005-3006865

6(Gas Diffusion Layer=ガス拡散層)を製造する工程である。G DL6は、カーボンクロスやカーボンペーパを撥水処理して形成するものであり、周縁の 枠体 6 Bと一体化させて搬送手段 6 Aにより、図 2 に示す状態で、ホットプレス工程 4 に 投入される。周縁の枠体6Bは、電気的絶縁材料で形成することが望ましいが、MEAフ ィルム9自体に絶縁性があるため、必ずしも絶縁材料で構成しなくてもよい。

[0015]

GDL6はMEAフィルム9と圧着する場合には、MEAフィルム9側で乾燥後の電解 質溶液のアンカ効果により、ホットプレス工程 4 においてMEAフィルム 9 に熱圧着する ことができる。また、MEAフィルム9に接着する場合には、フェノール系やエポキシ系 等の熱硬化樹脂を主体とする接着剤を全面でなく四隅等部分的に塗布した後に、搬送手段 6 Aによりホットプレス工程 4 に投入する。このように部分的に塗布することでホットプ レス工程4での加熱圧縮で、接着剤がMEAフィルム9とGDL6との間で硬化して両者 を部分的に接着することができ、GDL6のガス拡散性(透過性)を犠牲にすることを防 止できる。

[0016]

前記セパレータ製造工程3は、図2に示すように、GDL6と接触する面(MEAフィ ルムと対面する面)に、アノードガス(水素を含有する燃料ガス)及びカソードガス(酸 素を含有する酸化ガス)等の反応ガスを供給するの流路7Bを多数形成したセパレータ7 を製造する。セパレータ7は、グラファイト粉とプラスチック粉とを混合して金型による 加熱プレスにより圧縮成形したり膨張黒鉛シートをプレス成形したりすることで形成する 。また、金属によっても形成でき、電気抵抗が小さくガス透過性が低く、機械的強度があ り薄くできるが、酸化雰囲気と還元雰囲気の両方に晒されることから耐食性金属を用いた り金属メッキ等の表面処理が施される。また、セパレータ7の他方の面にも、冷却水が流 される冷却溝7C、若しくは、隣接して配置される燃料電池セルの反応ガスを供給する流 路7Dが多数形成される。

[0017]

なお、反応ガスの流路となる流路7Bは少なくともセパレータ7の一方の面に備えられ ていれば良く、燃料電池の動作温度を安定させるため、片側の面に冷却水などの熱媒体を 流すことができる溝7Cを備えても良い。両セパレータ7の周縁にはシール溝7Eが形成 され、このシール溝7Eは図示しない反応ガスや冷却水のマニホールドを囲んで配置され 、シール溝7日内にはシール用のガスケット10を挿入して、反応ガスや冷却水が流路7 B部分およびマニホールドから外部へ洩れ出ることを防止するように構成する。

$[0\ 0\ 1\ 8]$

また、セパレータ7のGDL6と対面する側の流路7Bを形成する溝同士を区画してい る壁の先端面7Fには、フェノール系やエポキシ系等の熱硬化性樹脂を主体とする接着剤 を塗布した後、搬送手段7Aによりホットプレス工程4へ投入される。前記接着剤は、ホ ットプレス工程4において、流路の壁先端面7FとGDL6とが接触して加熱プレスされ た際に、硬化して両者を熱接着させる。

[0019]

前記ホットプレス工程4は、前記各製造工程で製造されたMEAフィルム9、拡散層6 およびセパレータ7等の燃料電池構成部品を組合せてホットプレスにより加熱しつつプレ スすることで、MEAフィルム9と拡散層6とを熱圧着若しくは熱接着させ、拡散層6と セパレータ7とを熱接着させて一体化させる。ホットプレスの押し治具12Aは、図2に 示すように、平面でセパレータ7に接触するよう構成し、図示しないが内部に電熱ヒータ 等の加熱手段を備え、例えば、80℃~150℃の温度に保たれている。そして、ホット プレスの押し治具12Aは、図示の待機位置から矢印に示すように、図示しない加圧装置 により、セパレータ7同士を保持して互いに近接する方向に付勢して、MEAフィルム9 と両側のGDL6およびセパレータ7を圧接させる動作位置に移動する。

[0020]

MEAフィルム 9と両側のGDL6とは、ホットプレスされると、MEAフィルム 9側 出証特2005-3006865 で乾燥後の電解質溶液のアンカ効果により、両者は熱圧着により接合することができる。 また、熱硬化樹脂を主体とする接着剤が部分的に塗布されたGDL6においては、上記熱 圧着に加えて、ホットプレスによる加熱圧縮で、接着剤がMEAフィルム9とGDL6と の間で硬化して両者を部分的に熱接着させて接合することができる。

[0021]

また、GDL6とセパレータ7とは、セパレータ7のGDL6と対面する側の流路7Bを形成する溝同士を区画している壁の先端面7Fに塗布した熱硬化性樹脂を主体とする接着剤により、ホットプレスによる加熱圧縮で、接着剤がGDL6とセパレータ7の流路間の壁先端面7Fとの間で硬化して両者を熱接着させて接合することができる。

[0022]

したがって、一回のホットプレスにより、MEAフィルム9とGDL6は、互いが熱圧着更には熱接着により接合でき、GDL6とセパレータ7は、互いが熱接着により接合でき、燃料電池セルとして全体を一体化させることができる。

[0023]

前記ホットプレス工程 4 の押え治具 1 2 は、図 2 に示すものの他に、例えば、図 3 に示すように、セパレータ 7 の背面の流路 7 C(7 D)形状と一致して流路 7 C(7 D)の底部に嵌合する突条 1 3 を備える押え治具 1 2 B に形成することもできる。このセパレータ 7 の破損を防止するための押え治具 1 2 B においては、セパレータ 7 の背面に流路 7 C(7 D)が形成されたものであっても、セパレータ 7 の全表面を支えるようにしているため、セパレータ 7 を全体的に均一に押圧することができ、特に脆い黒鉛で形成されたセパレータ 7 であっても、薄肉部等で破損されるのを抑制することが一層容易となる。

[0024]

図3に示す押え治具12Cは、夫々のセパレータ7背面の流路7C(7D)の底部に嵌合する突条13を形成したものであり、両側の背面に流路7C(7D)が形成されたセパレータ7を備える燃料電池セルに対して、特に脆い黒鉛で形成されたセパレータ7であっても、薄肉部等で破損されるのを効果的に抑制するようにしたものである。

[0025]

なお、上記実施形態において、押え治具12自体にセパレータ7側形状の凹凸を補完する表面形状、例えば、流路7C(7D)形状を補完する突条13を備えるものについて説明したが、図示しないが、押え治具12とセパレータ7との間に、セパレータ7側形状の凹凸を補完する表面形状を備える部材を介在させるようにしてもよい。

[0026]

本実施形態においては、以下に記載する効果を奏することができる。

[0027]

(ア) 固体高分子膜5の両側に夫々拡散層6を介在させてアノードガスを供給する流路7Bを備えたアノード側セパレータ7とカソードガスを供給する流路7Bを備えたカソード側セパレータ7とを接合して形成する固体高分子膜型燃料電池セルの製造方法において、前記アノード側セパレータ7およびカソード側セパレータ7の流路7B部分の拡散層6との接触表面7Fに接着剤を塗布し、一対の押え治具12間に、前記アノード側セパレータ7、拡散層6、固体高分子膜5、拡散層6およびカソード側セパレータ7をこの順に配列し、これら燃料電池セル構成部材を加熱手段により加熱しつつ押え治具12により積層方向に圧縮し、固体高分子膜5とその両側の拡散層6とを熱圧着若しくは接着剤により接着させるとともに、各拡散層6と隣接するセパレータ7の流路7B部分の前記接触表面7Fとを接着剤により熱接着させるため、固体高分子膜5と拡散層6の圧着若しくは接着と拡散層6とセパレータ7の間の接着とが同時に実施でき、燃料電池セルの各構成部材をホットプレスにより一度に一体化させることができる。

[0028]

(イ)接着剤は、熱硬化樹脂を主体とするものであるため、固体高分子膜5と拡散層6の熱圧着と同時に硬化させて熱接着させることができ、2液性の接着剤に比較して短時間で硬化でき、短時間で燃料電池セルを製造することができる。

[0029]

(ウ) 固体高分子膜 5 として、その両面に触媒層 8 を備える複合膜(MEAフィルム) 9 を用いる場合には、固体高分子膜 5 に触媒を塗布し乾燥させる工程を無くすることができ、燃料電池セルの製造工程を簡素化できる。

[0030]

(エ)押え治具12とセパレータ7との間に、当接するセパレータ7側形状の凹凸を補完する表面形状を備える部材を介在させるか、若しくは、押え治具12自体にセパレータ7側形状の凹凸を補完する表面形状として、セパレータ7を積層方向に押圧するようにすると、セパレータ7を背面全面で支えることができ、弾性の高い材料からなる拡散層(GDL)6と特に脆い材料の黒鉛からなるセパレータ7等の組合せであっても、セパレータ7の破損や変形を防止することができる。

[0031]

(オ)得られる燃料電池セルは、一対の押え治具12間に、アノード側セパレータ7、拡散層6、固体高分子膜5、拡散層6およびカソード側セパレータ7をこの順に配列して、これら燃料電池セル構成部材を加熱手段により加熱しつつ押え治具12により積層方向に圧縮して、固体高分子膜5とその両側の拡散層6とを熱圧着若しくは接着剤により接着するとともに、各拡散層6と隣接するセパレータ7の流路7B部分の接触表面7Fとを接着剤により接着したため、拡散層6はセパレータ7の流路7B部分の接触表面7Fと隙間無く確実に接合させることができ、両者の電気的接続も良好となる。

【図面の簡単な説明】

[0032]

【図1】本発明の一実施形態を示す固体高分子膜型燃料電池セルの製造工程の概要を 説明する工程図。

【図2】同じくホットプレス工程の詳細断面図。

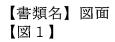
【図3】ホットプレス工程の押え治具の別の実施例を示す断面図。

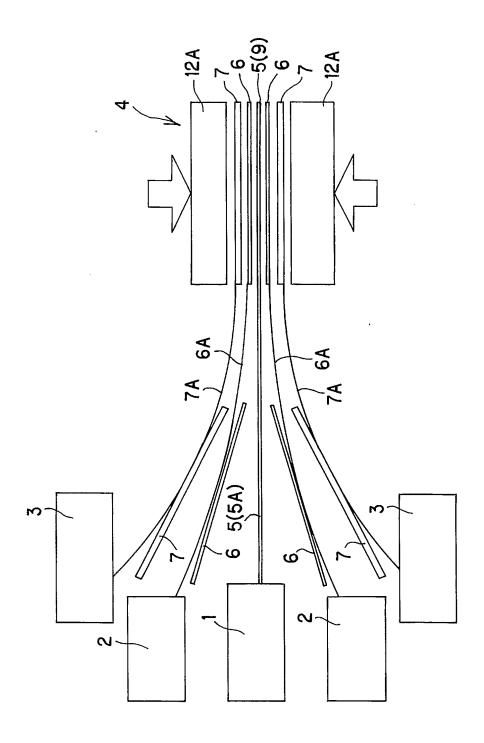
【図4】ホットプレス工程の押え治具の更に別の実施例を示す断面図。

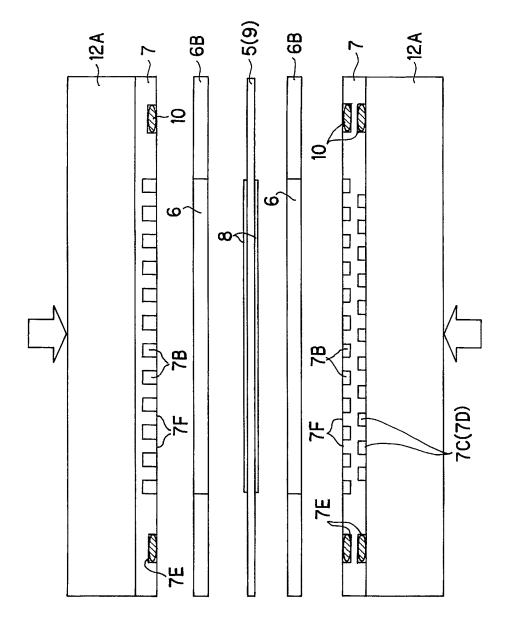
【符号の説明】

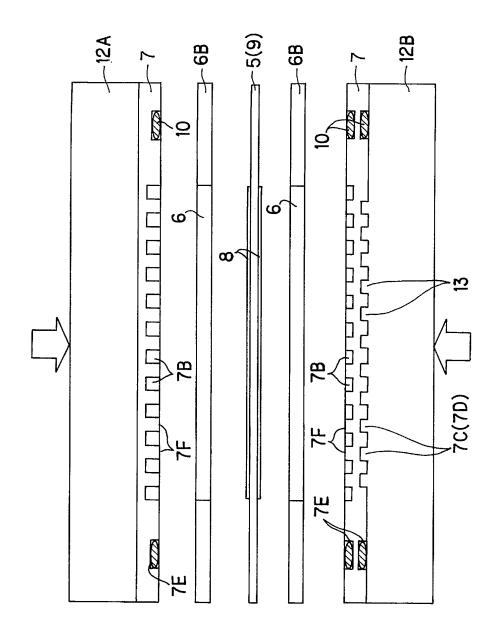
[0033]

- 1 電解質膜製造工程
- 2 拡散層製造工程
- 3 セパレータ製造工程
- 4 ホットプレス工程
- 5 電解質膜
- 6 拡散層、GDL
- 7 セパレータ
- 8 触媒層
- 9 MEAフィルム
- 10 ガスケット
- 12 押え治具
- 13 突条



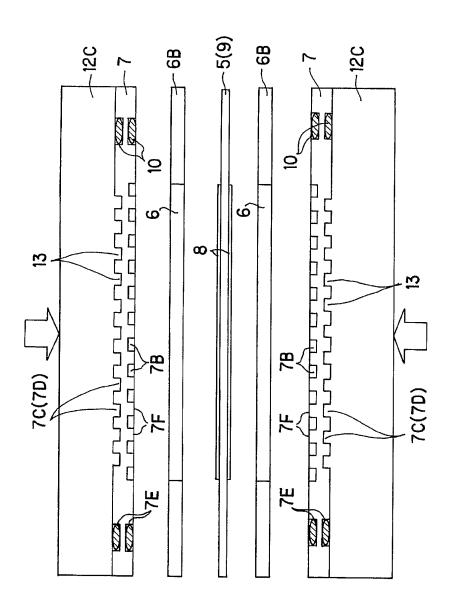








【図4】





【書類名】要約書

【要約】

【課題】 電解質膜への拡散層およびセパレータの接合を同時に可能とする固体高分子膜型燃料電池セルおよびその製造方法を提供する。

【解決手段】 一対の押え治具12間に、アノード側セパレータ7、拡散層6、固体高分子膜5、拡散層6およびカソード側セパレータ7をこの順に配列し、これら燃料電池セル構成部材を加熱手段により加熱しつつ押え治具12により積層方向に圧縮し、固体高分子膜5とその両側の拡散層6とを熱圧着若しくは接着剤により接着させるとともに、各拡散層6と隣接するセパレータ7の流路7B部分の前記接触表面7Fとを接着剤により熱接着させるようにした。

【選択図】 図2



特願2004-019743

出願人履歴情報

識別番号

[000003997]

1. 変更年月日 1990年 8月31日

[変更理由]

新規登録

住 所

神奈川県横浜市神奈川区宝町2番地

氏 名

日産自動車株式会社